

Rec'd PCT/PTO 23 SEP 2004



REC'D 23 JUN 2003

WIPO

PCT

**10/508881**

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 102 13 326.3

**Anmeldetag:** 25. März 2002

**Anmelder/Inhaber:** Viessmann Werke GmbH & Co, Allendorf/DE;  
Süd-Chemie AG, München/DE.

Erstanmelder:  
Viessmann Werke GmbH & Co, Allendorf/DE

**Bezeichnung:** Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff

**IPC:** C 01 B 3/32

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 24. März 2003  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Hiebinger

**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

### Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff

Die Erfindung betrifft einen Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

Apparate der eingangs genannten Art sind beispielsweise aus der (noch nicht veröffentlichten) DE 100 57 537.4 bekannt. Im Verbund mit beispielsweise einer sogenannten PEM-Brennstoffzelle dienen sie zur Strom- und Wärmeerzeugung, wobei der im Reformier aus dem Kohlenwasserstoffgas reformierte Wasserstoff in der Brennstoffzelle auf bekannte Weise umgesetzt wird. Derartige Anlagen werden sowohl im stationären Bereich als auch mobil (bei Kraftfahrzeugen) eingesetzt.

Dem Reformier sind zur Gasreinigung in der Regel ~~einige~~ Katalysatorstufen nachgeschaltet, die bei unterschiedlichen Temperaturniveaus insbesondere die Konzentration des für die Brennstoffzelle schädlichen Kohlenmonoxids verringern. Beispielsweise folgt bei einer bekannten Ausführungsform dem Katalysator eine sogenannte Hochtemperaturshiftstufe, die bei einem Temperaturniveau von etwa 500°C für eine erhebliche Reduktion der Kohlenmonoxidkonzentration sorgt. Die restlichen Kohlenmonoxidanteile werden nachfolgend mittels einer sogenannten Niedertemperaturshiftstufe (bei etwa 300°C) sowie einer sogenannten SelOx-Stufe auf ein für die Brennstoffzelle geeignetes Maß reduziert.

Die in der Hochtemperatur-, Niedertemperatur- und SelOx-Stufe (wahlweise wird alternativ eine Methanisierungsstufe eingesetzt) verwendeten Katalysatoren, zwischen denen zur Realisierung der erwähnten Temperaturniveaus Wärmetauscher angeordnet

sind, weisen, soweit bekannt, bei den bisher verwendeten Gas-erzeugungssystemen eine zylindrische Form auf, d. h. ähnlich wie bei einem Katalysator eines Kraftfahrzeugs besteht dieser aus einem zylindrischen Körper, der in Längsrichtung vom Reformergas durchströmbare Waben aufweist, die mit einer den Katalysatorprozess auslösenden Beschichtung versehen bzw. aus einem entsprechenden Material gebildet sind.

Als für die Gasreinigung problematisch hat sich bei diesen bisher verwendeten Katalysatoren herausgestellt, dass sich aufgrund der exothermen Reaktion des Reformergases bei der Gasreinigung bezogen auf den Querschnitt der Katalysatoren unterschiedliche Temperaturniveaus einstellen, was dazu führt, dass die Reinheit des Gases davon abhängt, welcher Querschnittsbereich gerade durchströmt wird.

Der Erfindung liegt mithin die Aufgabe zugrunde, bei einem Apparat der eingangs genannten Art in konstruktiver Hinsicht auf möglichst einfache Art und Weise dafür zu sorgen, dass das Reformergas eine möglichst gleichmäßige Reinigung erfährt, und zwar unabhängig davon, welchen (radialen) Bereich der Katalysatoren es nach der Reformierung durchströmt.

Diese Aufgabe wird nach der Erfindung mit einem Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff durch die im Kennzeichen des Anspruchs 1 aufgeführten Merkmale gelöst.

Nach der Erfindung ist somit vorgesehen, dass die nachgeschalteten Katalysatoren zumindest angenähert hohlzylindrisch ausgebildet sind, was dazu führt, dass sich bezüglich des Durchströmungsquerschnitts der einzelnen Katalysatorstufen ein im wesentlichen isothermes Temperaturprofil ausbildet, da bei entsprechend gleicher Strömungsquerschnittsfläche bezogen auf

einen zylindrischen Katalysator der Abstand zwischen den Randbereichen deutlich geringer ausfällt. Die Maßgabe "zumindest angenähert hohlzylindrisch" bedeutet dabei, dass letztlich, gewissermaßen als verschlechterte Ausführungsform, natürlich auch beispielsweise dreieckige, rechteckige oder mehreckige Hohlquerschnitte gemeint sind, denn auch bei diesen Strömungsquerschnitten ergibt sich (mehr oder weniger) zwischen den Randbereichen ein angenähert isothermes Temperaturprofil.

Der wesentliche Vorteil der erfindungsgemäßen Lösung liegt also darin, dass die Temperaturverteilung in den sogenannten Ringwaben (hohlzylinderförmige Katalysatorstufen) radial gesehen günstiger ist, d. h. der Temperaturgradient ist zumindest deutlich kleiner als bei herkömmlichen Zylinderwaben. Da für den Betrieb der Brennstoffzelle ferner nur geringe Temperaturfenster zugelassen werden können (andernfalls würde der Kohlenmonoxidanteil zu stark ansteigen), ist diese Katalysatorgeometrie besonders gut geeignet.

Sollte der erfindungsgemäße Apparat mehr als eine Katalysatorstufe aufweisen, was in der Regel der Fall ist, ist vorteilhaft vorgesehen, dass alle Katalysatorstufen und auch eine nachgeschaltete Gasfeinreinigungsstufe in Form eines konzentrischen Hohlzylinders ausgebildet sind.

Um für einen optimalen Übergang der Reformer-Produkte zur Katalysatorstufe zu sorgen, ist ferner vorteilhaft vorgesehen, dass auch der Reformer in Form eines Hohlzylinders ausgebildet und ein Reformer-Brenner zentrisch darin angeordnet ist.

Zur weiteren Vergleichmäßigung des Temperaturprofils bezogen auf den Querschnitt der hohlzylinderförmigen Katalysatorstufe ist darüber hinaus bevorzugt vorgesehen, dass der mindestens

eine Katalysator aus einer Strömungskanäle begrenzenden Metallfolie gebildet ist, die zur Verbesserung des Stoffaustauschs innerhalb des Hohlzylinders zwischen den einzelnen Strömungskanälen eine Perforation aufweist. Diese Maßgabe hat zur Folge, dass die Reformier-Produkte nicht nur axial, sondern zum Temperatenausgleich auch in gewissen Grenzen quer durch die Katalysatorstufen strömen können, denn die Perforation bewirkt eine Erhöhung der Turbulenz, so dass auch das Gas in der Kernströmung mit den Katalysatoroberflächen in Kontakt kommt.

Eine besonders bevorzugte Ausführungsform besteht ferner darin, dass im hohlen Innern der mindestens einen hohlzylinderförmigen Katalysatorstufe ein Strömungskanal vorgesehen ist. Dieser Strömungskanal dient dabei insbesondere dazu, das zur Reformierung erforderliche Kohlenwasserstoffgas nach dem Prinzip des Gegenstrom-Wärmetauschs an den Katalysatorstufen aufzuheizen, um es dann anschließend über eine Verbindungsleitung dem Reformier zuzuführen.

Besonders effektiv findet dieser Wärmetausch schließlich dann statt, wenn der Strömungskanal über mindestens einen Wärmetauscher thermisch mit der mindestens einen hohlzylinderförmigen Katalysatorstufe verbunden ist.

Der erfindungsgemäße Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff einschließlich seiner vorteilhaften Weiterbildungen gemäß der Unteransprüche wird nachfolgend anhand der zeichnerischen Darstellung eines Ausführungsbeispiels näher erläutert.

In der einzigen Fig. 1 ist der erfindungsgemäße Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff im Schnitt (ohne umlaufende Kanten) als Prinzipskizze dargestellt. Dieser umfasst einen Reformier 1 zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffgas  $\text{CH}_4$  und Wasser in Was-

serstoff und weitere Reformer-Produkte (Reformat), wobei der Reformer 1 bei diesem bevorzugten Ausführungsbeispiel in Form eines Hohlzylinders ausgebildet und darin ein Reformer-Brenner 4 (beispielsweise Gasflächenbrenner) zentrisch angeordnet ist (Wärmeentwicklung gestrichelt angedeutet). Zur chemischen Aufbereitung der Reformer-Produkte sind dem Reformer 1 drei Katalysatorstufen 2 nachgeschaltet, wobei die dritte als Gasfeinreinigungsstufe 3 (sogenannte SelOx- oder Methanisierungsstufe) ausgebildet ist. Die reformerseitige Katalysatorstufe ist die sogenannte Hochtemperaturshiftstufe, während die gasfeinreinigungsstufenseitige die Niedertemperaturshiftstufe darstellt.

Wesentlich für diesen Apparat ist nun, dass die mindestens eine Katalysatorstufe 2, vorzugsweise - wie dargestellt - alle, mindestens angenähert in Form eines Hohlzylinders ausgebildet ist (was selbstverständlich auch für die Gasfeinreinigungsstufe gilt).

Zur Vergleichmäßigung der Temperatur innerhalb der Katalysatorstufen ist, wie bereits erwähnt, vorzugsweise vorgesehen (was nicht extra dargestellt ist, da ohne weiteres vorstellbar), dass der mindestens eine Katalysator 2 aus einer Strömungskanäle begrenzenden Metallfolie gebildet ist, die eine Perforation aufweist.

Eine besonders vorteilhafte Weiterbildung des erfindungsgemäßen Apparats besteht ferner darin, dass im hohlen Innern der mindestens einen hohlzylinderförmigen Katalysatorstufe 2 ein Strömungskanal 5 vorgesehen ist. Durch diesen Strömungskanal 5 wird das Kohlenwasserstoffgas zu dessen Vorwärmung entgegen der Strömungsrichtung der Reformer-Produkte geführt, d. h. die an den Katalysatorstufen bei der exothermen Reinigungsreaktion

anfallenden Wärmen werden direkt verwendet, um die Reformere Edukte zu erwärmen.

Zur Trennung des hohlzylindrischen Reformerraums vom Strömungskanal 5 ist die mit dem Bezugszeichen 7 gekennzeichnete Trennwand vorgesehen, d. h. das an der Gasfeinreinigungsstufe eintretende Kohlenwasserstoffgas durchströmt zunächst, wie beschrieben, im Gegenstrom die Katalysatorstufen, um dann über den schematisch dargestellten und im Bereich der Trennwand 7 angeordneten Anschluss 8 zum Eintritt des Reformers 1 geführt zu werden.

Um schließlich auch das für den Reformierungsprozess erforderliche Wasser vorzuheizen, ist vorgesehen, dass zwischen den einzelnen Katalysatorstufen 2 Wärmetauscher 6 (beispielsweise Wendelrohrwärmetauscher) angeordnet sind, die einerseits vom Prozesswasser durchströmt werden und die andererseits thermisch auch mit dem Strömungskanal 5 verbunden sind.

**Bezugszeichenliste**

- 1 Reformer
- 2 Katalysatorstufe
- 3 Gasfeinreinigungsstufe
- 4 Reformer-Brenner
- 5 Strömungskanal
- 6 Wärmetauscher
- 7 Trennwand
- 8 Anschluss



### Patentansprüche

1. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff, umfassend einen Reformer (1) zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffgas und Wasser in Wasserstoff und weitere Reformer-Produkte, wobei dem Reformer (1) zur chemischen Aufbereitung der Reformer-Produkte mindestens eine Katalysatorstufe (2) nachgeschaltet ist,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass die mindestens eine Katalysatorstufe (2) mindestens angenähert in Form eines Hohlzylinders ausgebildet ist.
2. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach Anspruch 1,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass bei Verwendung von mehr als einer Katalysatorstufe (2) alle Katalysatorstufen (2) und auch eine nachgeschaltet Gasfeinreinigungsstufe (3) in Form eines Hohlzylinders ausgebildet sind.
3. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach Anspruch 1 oder 2,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass der Reformer (1) in Form eines Hohlzylinders ausgebildet und ein Reformer-Brenner (4) zentrisch darin angeordnet ist.
4. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach einem der Ansprüche 1 bis 3,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass der mindestens eine Katalysator (2) aus einer Strömungskanäle begrenzenden Metallfolie gebildet ist, die zur

Verbesserung des Stoffaustauschs innerhalb des Hohlzylinders zwischen den einzelnen Strömungskanälen eine Perforation aufweist.

5. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach einem der Ansprüche 1 bis 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass im hohlen Innern der mindestens einen hohlzylinderförmigen Katalysatorstufe (2) ein Strömungskanal (5) vorgesehen ist.
6. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach Anspruch 5,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass der Strömungskanal (5) das Kohlenwasserstoffgas zu dessen Vorwärmung entgegen der Strömungsrichtung der Reformmer-Produkte führt und mit dem Reformmer (1) verbunden ist.
7. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach Anspruch 5 oder 6,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass der Strömungskanal (5) über mindestens einen Wärmetauscher (6) thermisch mit der mindestens einen hohlzylinderförmigen Katalysatorstufe (2) verbunden ist.
8. Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff nach Anspruch 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
dass das zur Reformierung erforderliche Wasser durch den Wärmetauscher (6) geführt ist.

### **Zusammenfassung**

Die Erfindung betrifft einen Apparat zur Erzeugung von Wasserstoff, der einen Reformer (1) zur Umwandlung von Kohlenwasserstoffgas und Wasser in Wasserstoff und weitere Reformer-Produkte umfasst, wobei dem Reformer (1) zur chemischen Aufbereitung der Reformer-Produkte mindestens eine Katalysatorstufe (2) nachgeschaltet ist. Nach der Erfindung ist vorgesehen, dass die mindestens eine Katalysatorstufe (2) mindestens annähernd in Form eines Hohlzylinders ausgebildet ist.

(Fig. 1)

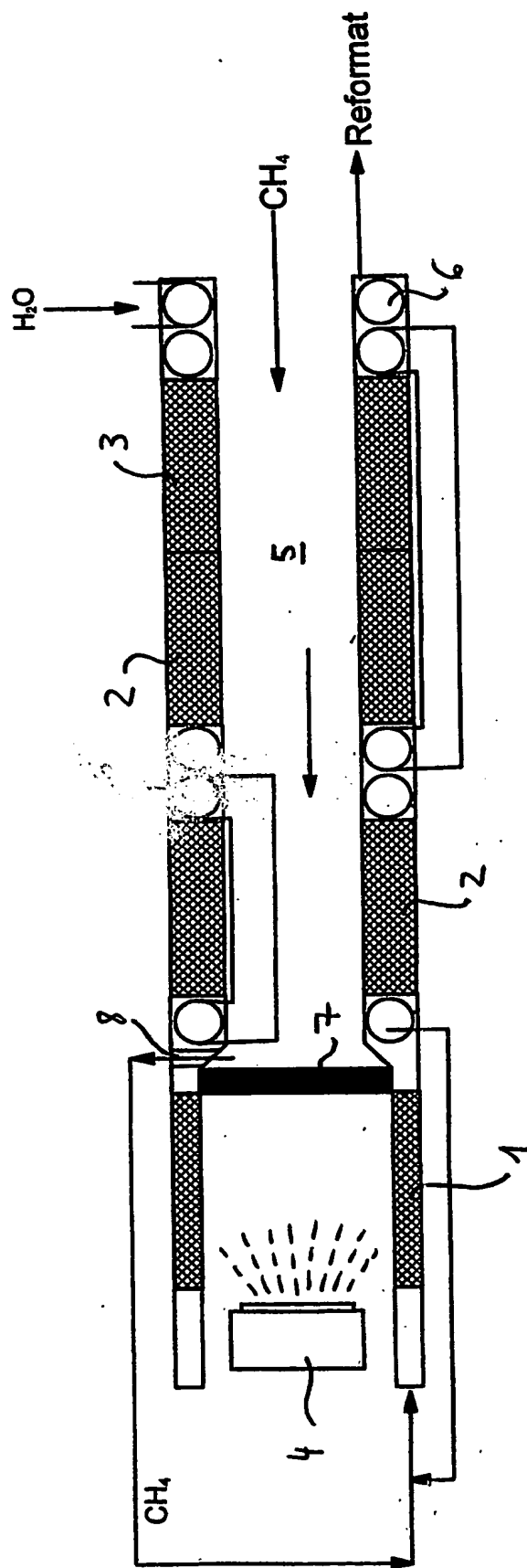


Fig. 1